

## Películas de fotopolímero para la fabricación de memorias holográficas: desviación del perfil sinusoidal en redes almacenadas

### Photopolymer films to design holographic memories: deviation of the sinusoidal profile in the stored gratings

S. Gallego<sup>(1,\*)</sup>, M. Ortuño<sup>(1)</sup>, C. Neipp<sup>(1)</sup>, E. Fernández<sup>(2)</sup>, A. Márquez<sup>(1)</sup>,  
A. Beléndez<sup>(1)</sup> e I. Pascual<sup>(2)</sup>

<sup>1</sup> Dpt. de Física, Ingeniería de Sistemas y Teoría de la Señal, Universidad de Alicante, Apartado 99, E-03080 Alicante.

<sup>2</sup> Dpt. Interuniversitario de Óptica, Universidad de Alicante, Apartado 99, E-03080 Alicante.

\* Email de contacto: [Sergi.Gallego@ua.es](mailto:Sergi.Gallego@ua.es)

#### RESUMEN:

Los fotopolímeros de espesor elevado constituyen una base óptima para la fabricación de memorias holográficas. A la hora de caracterizar estos materiales su espesor cercano al milímetro hace que los numerosos modelos existentes para estudiar capas delgadas deban ser reformulados teniendo en cuenta la absorción de la luz con la profundidad y los efectos derivados de este fenómeno. En este trabajo estudiamos la desviación del perfil sinusoidal almacenado en fotopolímeros de alrededor de 1 mm mediante un modelo que estudia el comportamiento del material en 3 dimensiones resuelto por diferencias finitas.

**Palabras clave:** Holografía, Almacenamiento de Información, Fotopolímeros.

#### ABSTRACT:

Thick photopolymers are the base to design holographic memories. The high thickness implies the reformulation of the 2-dimensional models to take into account the absorption of the light inside the material and the effects derived from this phenomenon. In this work we analyze deviation of the sinusoidal profile in the gratings stored in the photopolymer using 3-dimensional model solved by finite differences method.

**Keywords:** Holography, Data storage, Photopolymers.

#### REFERENCIAS Y ENLACES

- [1] D. A. Waldman, C. J. Butler, and D. H. Raguin, "CROP holographic storage media for optical data storage at grater than 100 bits/ $\mu\text{m}^2$ ", *Proc. SPIE* **5216**, 10-25 (2003).
- [2] S. S. Orlov, W. Philips, E. Bjormson, Y. Takashima, P. Sundaram, L. Hesselink, R. Okas, D. Kwan, R. Snyder, "High-transfer-rate high-capacity holographic disk data-storage system", *Appl. Opt.* **43**, 4902-4914 (2004).
- [3] R. R. McLeod, A. J. Daiber, M. E. McDonald, T. L. Robertson, T. S. Slagle, S. L. Sochava, L. Hesselink, "Microholographic multilayer optical disk data storage", *Appl. Opt.* **44**, 3197-3207 (2005).
- [4] J. T. Sheridan, F. T. O'Neill, J. V. Kelly, "Holographic data storage: optimized scheduling using the non local polymerization-driven diffusion model," *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1443-1451 (2004).
- [5] M. Dubois, X. Shi, C. Erben, L. Longley, E. P. Boden, B. L. Lawrence, "Characterization of microholograms recorded in a thermoplastic medium for three-dimensional optical data storage", *Opt. Lett.* **30**, 1947-1949 (2005).

- [6] A. S. Bablumian, T. F. Krile, "Multiplexed holograms in thick bacteriorhodopsin films for optical memory/interconnections", *Opt. Eng.* **39**, 2964-2974 (2000).
- [7] H. J. Coufal, D. Psaltis, G. T. Sincerbox, *Holographic Data Storage*, Springer-Verlag, New York (2000).
- [8] C. Neipp, J. T. Sheridan, S. Gallego, M. Ortuño, A. Márquez, I. Pascual, A. Beléndez, "Effect of a depth attenuated refractive index profile in the angular responses of the efficiency of higher orders in volume gratings recorded in a PVA/acrylamide photopolymer", *Opt. Commun.* **233**, 311-322 (2004).
- [9] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, "Characterization of polyvinyl alcohol/acrylamide holographic memories with a first-harmonic diffusion model", *Appl. Opt.* **44**, 6205-6210 (2005).
- [10] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, J. V. Kelly, J. T. Sheridan, "Physical and effective optical thickness of holographic diffraction gratings recorded in photopolymers", *Opt. Express* **13**, 1939-1950 (2005).
- [11] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, J. V. Kelly, J. T. Sheridan, "3 Dimensional analysis of holographic photopolymers based memories", *Opt. Express* **13** 3543-3554 (2005).
- [12] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, E. Fernández, I. Pascual, "3-dimensional characterization of thick grating formation in PVA/AA based photopolymer", *Opt. Express* **14**, 5121-5128, (2006).
- [13] M. G. Moharam, E. B. Grann, D. A. Pommet, T. K. Gaylord, "Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings", *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 1068-1076 (1995).
- [15] J. V. Kelly, M. R. Gleeson, C. E. Close, F. T. O' Neill, J. T. Sheridan, S. Gallego, C. Neipp, "Temporal analysis of grating formation in photopolymer using the nonlocal polymerization-driven diffusion model", *Opt. Express* **13**, 6990-7004 (2005).
- [16] S.-D. Wu, E. Glytsis, "Holographic grating formation in photopolymers: analysis and experimental results based on a nonlocal diffusion model and rigorous coupled-wave analysis", *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1177-1188 (2003).

## 1. Introducción

La aparición de las primeras memorias holográficas comerciales desarrolladas por las compañías Aprilis e Inphase [1,2] han sido los primeros resultados tangibles de los estudios realizados sobre materiales de registro para la fabricación de dichos dispositivos de almacenamiento de datos. Por ello el gran interés suscitado por las memorias holográficas a finales del siglo XX ha continuado creciendo exponencialmente. La propuesta de nuevos materiales para ser utilizados como soporte de dichas memorias y su comparación con los modelos comerciales es un hecho constatable en las revistas de óptica recientemente publicadas [3-6]. Una de las características que deben poseer dichos materiales para alcanzar altas capacidades de almacenamiento de información es la de contar con espesores superiores a 0.5 mm [7]. En la universidad de Alicante se han desarrollado películas de alrededor de 1mm de espesor donde se han registrado múltiples hologramas analizando la capacidad de almacenamiento de dicho material [8], también se han realizado primeras aproximaciones para calcular los parámetros que intervienen en la formación del holograma [9]. El objetivo del presente trabajo es

abordar la formación del holograma en el fotopolímero mediante un modelo que tiene en cuenta la absorción de la luz con la profundidad y la difusión del monómero en dicha dirección. Para abordar esta problemática se resolverán las ecuaciones diferenciales tridimensionales mediante el método de diferencias finitas. Esto representa una novedad significativa respecto a los trabajos previos de nuestro grupo de investigación y el de otros autores donde se estudiaba la formación de la red suponiendo que era uniforme con la profundidad. La necesidad de estos modelos tridimensionales ha quedado patente cuando se trabaja con espesores elevados y menos de un 1% de la luz de registro llega a las profundidades del material [10-12]. Dentro del estudio teórico que pudiera ser muy amplio, nos centraremos en la desviación del perfil sinusoidal en las redes almacenadas. Conjuntamente el trabajo teórico, hemos medido los armónicos superiores en las redes almacenadas en un fotopolímero basado en PVA/AA cuando su composición está optimizada para que el grosor de dicha película sea de alrededor de 0.6 mm, el periodo de dichas redes será de 0.88  $\mu\text{m}$ . Para analizar adecuadamente los datos experimentales hemos valorado la difusión de monómero que existe

en el fotopolímero, este es el factor que determina la importancia de los armónicos superiores en las redes almacenadas en fotopolímeros. Por último cabe reseñar que para el análisis de los ordenes superiores de difracción hemos utilizado un algoritmo basado en la Teoría Rigurosa de Ondas Acopladas desarrollada por Moharam y T. K. Gaylor [8,13].

## 2. Modelos teóricos

La formación de una red de difracción holográfica en fotopolímeros es la superposición de una red de monómero y otra de polímero que cumplen las siguientes ecuaciones durante la etapa de formación del holograma:

$$\frac{\partial[M](x,z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} D \frac{\partial[M](x,z,t)}{\partial x} - k_R(t) I^\gamma(x,z,t) [M](x,z,t) + \frac{\partial}{\partial z} D \frac{\partial[M](x,z,t)}{\partial z}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial[P](x,z,t)}{\partial t} = k_R(t) I^\gamma(x,z,t) [M](x,z,t) \quad (2)$$

donde  $[M]$  es la concentración de monómero,  $[P]$  es la concentración de polímero,  $D$  es la difusión del monómero en el material y  $\gamma$  indica la relación entre la intensidad incidente y la velocidad de polimerización ( $k_R$ ), suponemos que disminuye exponencialmente para exposiciones elevadas debido al aumento de viscosidad interna de película como ya hemos hecho en trabajos previos [10]. En este trabajo suponemos que  $\gamma = 0.5$  – respuesta no lineal del material. En estas ecuaciones abordadas por distintos autores no se tiene en cuenta las variaciones de la concentración de colorante al considerar que en el material existe colorante en exceso y sobretodo cuando únicamente se registra una red.

Las ecuaciones 1 y 2 se han resuelto mediante el método de diferencias finitas de forma similar a las resueltas por J. V. Kelly en el caso unidimensional (capas de espesores del orden de 0.1 mm) [14]. De esta manera se obtienen:

$$M_{i,j,k} = \frac{\Delta t D}{\Delta x^2} (M_{i+1,j,k-1} - 2M_{i,j,k-1} + M_{i-1,j,k-1}) + \frac{\Delta t D}{\Delta z^2} (M_{i,j+1,k-1} - M_{i,j,k-1} + M_{i,j-1,k-1}) - \Delta t k_{i,j,k-1} I_{i,j,k-1} M_{i,j,k-1} + M_{i,j,k-1} \quad (3)$$

$$P_{i,j,k} = \Delta t k_{i,j,k-1} I_{i,j,k-1} M_{i,j,k-1} + P_{i,j,k-1} \quad (4)$$

$M_{i,j,k}$  es la concentración de monómero en el punto espacial  $i$ -ésimo y  $j$ -ésimo (donde  $\Delta x$  y  $\Delta z$  son los incrementos en las direcciones X y Z) y en instante  $k$ -ésimo (donde  $\Delta t$  es el incremento temporal que ha de cumplir las condiciones de estabilidad [10]).

La intensidad de registro que incidirá sobre el material corresponderá con una red sinusoidal atenuada con el espesor.

$$I_{i,j,k} = I_0 e^{-\alpha(t)j\Delta z k} [1 + \cos(K_g i \Delta x)] \quad (5)$$

donde  $K_g$  es el número de red, que depende del periodo de la red como:

$$K_g = \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (6)$$

Las redes analizados en este trabajo tienen una frecuencia espacial de 1125 líneas/mm ( $\Lambda$  vale 0.88  $\mu\text{m}$ ).  $\alpha$  es el coeficiente de atenuación de la luz en el interior del material. El valor inicial de  $\alpha$  ( $\alpha(t=0)=\alpha_0$ ) se puede determinar midiendo inicialmente la transmitancia del material, que para las redes utilizadas en este trabajo se sitúa alrededor de 0.8% es decir valores de  $\alpha$  de 0.006  $\mu\text{m}^{-1}$  [11]. La absorción de luz por el colorante se va modificando según éste se va consumiendo por lo que en una primera aproximación se puede escribir la variación de la absorción como:

$$\alpha(t) = \alpha_0 \exp(-K_\alpha \cdot I_0^\beta \cdot t), \quad (7)$$

donde  $\beta$  que determina la importancia de la intensidad en la concentración de colorante y depende de muchos factores (composición química del material, humedad y tiempo de secado, temperatura, etc.).  $K_\alpha$  nos da la velocidad con la que el colorante es consumido en la reacción que tiene lugar en el material. Para intensidades de 5  $\text{mW}/\text{cm}^2$  y  $\beta = 0.5$ , toma el valor de  $K_\alpha = 0.005 \text{ cm mW}^{-0.5} \text{ s}^{-1}$  en una primera aproximación (ver ref. [11]).

Para garantizar la estabilidad de las soluciones numéricas es necesario elegir un incremento temporal acorde con las variaciones en el eje X este criterio de estabilidad [15,16] se puede escribir como:

$$\Delta t \leq \frac{1}{2} \frac{(\Delta x)^2}{D} \quad (8)$$

En este artículo hemos elegido  $\Delta t = 0.4 (\Delta x^2/D)$ , como lo han hecho otros autores Wu y Glytsis [15] o J. V. Kelly *et al* [14] aunque ellos lo han expresado con variables adimensionales. La componente Z no comporta problemas de estabilidad al ser sus variaciones mucho más lentas que las del eje X.

Una vez obtenidos los perfiles de las distribuciones de polímero y monómero realizamos una transformada discreta de Fourier para encontrar todos los armónicos de dichas concentraciones y así obtener el rendimiento en difracción en función del ángulo de incidencia [10-12].

### 3. Resultados y discusión

En la Tabla I representamos los armónicos en las concentraciones de monómero y polímero 10 segundos después de iniciado el registro según el modelo propuesto en el apartado anterior. Para dos valores de la difusión de monómero, vemos como el modelo predice que los armónicos superiores disminuyen drásticamente para difusiones elevadas. En la Tabla I sólo se representan los valores de obtenidos para profundidades menores de 500µm porque la importancia de los armónicos superiores decrece drásticamente con la profundidad como se ve en la tabla. Por ello a partir de 500 micras su valor es del despreciable y la red se puede considerar completamente sinusoidal.

Tabla I

Armónicos en la concentración de monómero y polímero para  $D=4 \times 10^{-11} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$

Profundidad	$M_0$	$-M_1$	$M_2$	$M_3$
10 µm	0.0858	0.0155	0.0007	0.0000
100 µm	0.1146	0.0134	0.0004	0.0000
500 µm	0.1779	0.0028	0.0000	0.0000
	$P_0$	$P_1$	$-P_2$	$P_3$
10 µm	0.1042	0.0456	0.0054	0.0003
100 µm	0.0754	0.0347	0.0025	0.0001
500 µm	0.0121	0.0060	0.0000	0.0000

Tabla II

Armónicos en la concentración de monómero y polímero para  $D= 10^{-10} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$

Profundidad	$M_0$	$-M_1$	$M_2$	$M_3$
10 µm	0.0818	0.0070	0.0001	0.0000
100 µm	0.1126	0.0062	0.0000	0.0000
500 µm	0.1778	0.0014	0.0000	0.0000
	$P_0$	$P_1$	$-P_2$	$P_3$
10 µm	0.1082	0.0501	0.0032	0.0002
100 µm	0.0774	0.0369	0.0014	0.0001
500 µm	0.0122	0.0060	0.0000	0.0000

Tabla III

Armónicos en la concentración de monómero y polímero para  $D= 8 \times 10^{-10} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$

Profundidad	$M_0$	$-M_1$	$M_2$	$M_3$
10 µm	0.0808	0.0030	0.0000	0.0000
100 µm	0.1104	0.0020	0.0000	0.0000
500 µm	0.1758	0.0006	0.0000	0.0000
	$P_0$	$P_1$	$-P_2$	$P_3$
10 µm	0.1082	0.0525	0.0018	0.0001
100 µm	0.0774	0.0377	0.0006	0.0000
500 µm	0.0122	0.0070	0.0000	0.0000

Para realizar una constatación experimental de los datos proporcionados por el modelo, hemos utilizado la siguiente composición en la disolución acuosa que posteriormente hemos dejado secar 5 días para obtener la película seca de alrededor de 0.8 mm de espesor físico (ver tabla IV). Una vez registrado el holograma hemos procedido a obtener las respuestas angulares de los dos primeros órdenes de difracción alrededor de sus respectivos ángulos de Bragg.

Tabla IV

Composición de la disolución líquida para obtener la capa de fotopolímero

Componente	Concentraciones
Polivinil alcohol $M_w=130000$	13.30% w/v
Trietanolamina	0.15 M
Acrilamida	0.34 M
Eosina amarillenta	$9.00 \times 10^{-5}$ M

En la Figura 1 hemos representado el rendimiento en difracción ( $RD$ ), en tanto por uno, del primer orden de difracción alrededor del primer ángulo de Bragg, mientras que en la Figura 2 hemos representado el rendimiento, en tanto por uno, en difracción en función del ángulo alrededor del segundo ángulo de Bragg. Los principales datos obtenidos por los ajustes de las respuestas angulares son:  $n_1=0.00063$ ,  $d=0.6\text{mm}$  (como se puede comprobar el espesor óptico efectivo es menor que el espesor de la capa debido a la fuerte absorción del material [10]),  $n_2 \sim n_1/24$  (en capas finas el segundo armónico del índice de refracción era del orden de  $n_2 \sim n_1/9$ ). Esto nos indica que para la composición química optimizada para obtener capas gruesas la difusividad de monómero ha de ser del orden de  $6 \times 10^{-10} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  o ligeramente superior, esto está en concordancia con los resultados obtenidos en trabajos previos [12] y que tiene su origen en la

mayor cantidad de agua retenida por el plastificante utilizado (polivinil-alcohol, PVA) al utilizar altas concentraciones de este componente en las películas gruesas.

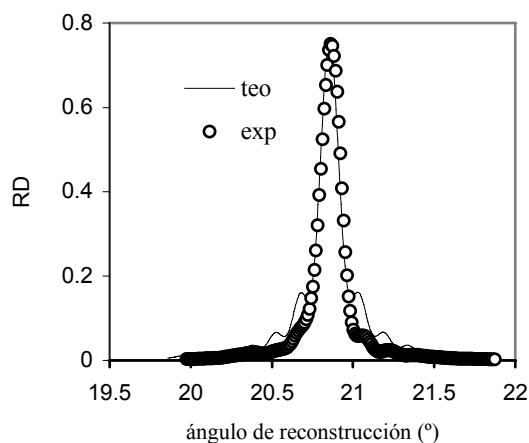


Fig 1. Reconstrucción de los hologramas con un láser He-Ne. RD del primer orden alrededor del primer ángulo de Bragg

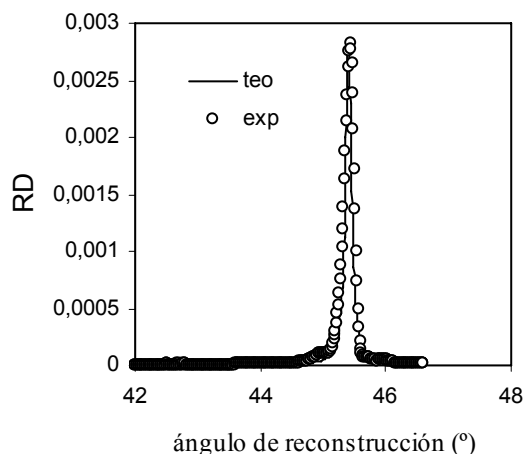


Fig. 2 Reconstrucción de los hologramas con un láser He-Ne. RD del segundo orden alrededor del segundo ángulo de Bragg.

#### 4. Conclusión

Hemos medido y evaluado los segundos órdenes difractados existentes en las redes almacenadas en películas de fotopolímero con espesores superiores a 0.5 mm, hemos podido comprobar que son mucho más débiles que las registradas en capas delgadas, por lo que la difusión de monómero jugará un papel más importante en la formación de los hologramas en este tipo de películas debido a las altas concentraciones de PVA. Hemos podido constatar la concordancia entre los modelos teóricos utilizados y los datos experimentales. Llegando a la conclusión que la desviación del perfil sinusoidal de la red almacenada es prácticamente insignificante (los armónicos superiores en las concentraciones de monómero y polímero son muy pequeños en comparación con el primero), el efecto que sí que es importante es la atenuación de la red almacenada con el espesor.

#### Agradecimientos

Este trabajo ha sido posible gracias a la financiación del Ministerio de Educación y Ciencia bajo los proyectos FIS2005-05881-C02-01 y FIS2005-05881-C02-02.